



TITLE:

A-11 核分裂照射下の原子燃料セラミックスのパターン形成(基礎物理学研究所研究会「複雑系6」報告,研究会報告)

AUTHOR(S):

増田, 秀俊; 木下, 幹康

CITATION:

増田, 秀俊 ...[et al]. A-11 核分裂照射下の原子燃料セラミックスのパターン形成(基礎物理学研究所研究会「複雑系6」報告,研究会報告). 物性研究 2000, 74(1): 67-74

ISSUE DATE:

2000-04-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96799>

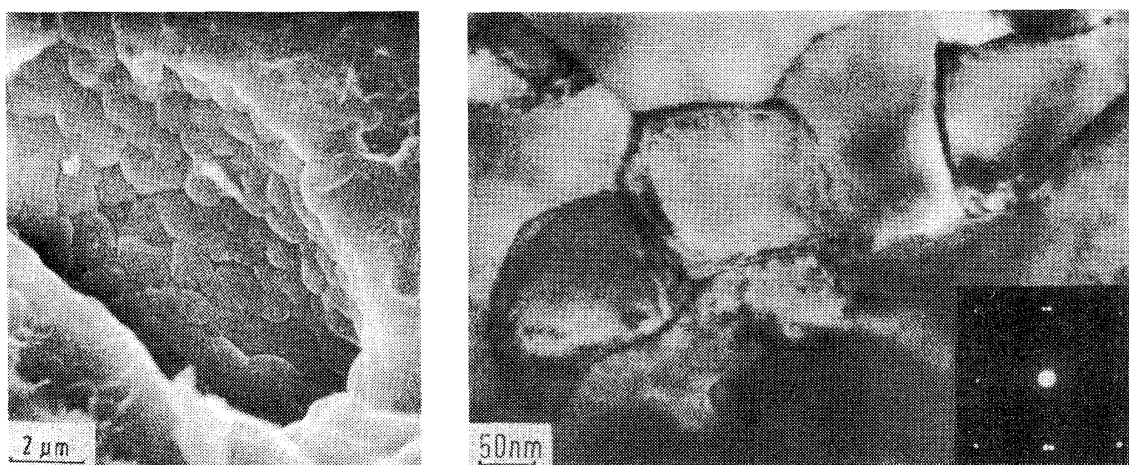
RIGHT:

核分裂照射下の原子燃料セラミックスのパターン形成

電中研 増田秀俊 木下幹康

[緒言]

原子炉の中で核分裂により燃焼する原子燃料セラミックス(UO_2 , UC 等)は, そのエネルギー取り出し量(燃焼度)があるしきい値を超えると結晶組織を変化させ, 燃料ペレットの外周部(リム部)にある特徴長さで結晶粒界を持つ新しいパターン構造が形成される[1]。Fig.1 に高燃焼 UO_2 燃料で観測され

Fig.1 高燃焼 UO_2 燃料のパターン構造

たパターン構造を示す。これらのパターン構造は粒径が約 100 nm の結晶粒によって形成されているが, 燃焼前の UO_2 燃料の結晶粒径は 10 μm 程度であり, 結晶粒の大きさが燃焼前と比較して約 1/100 に小さくなっている(細粒化現象)。この細粒化組織は, 燃焼前の結晶粒が照射下においてより小さな結晶粒に分割して形成されると考えられているが, 詳細は明らかではなく, 現在組織形成プロセスの定式化が待たれている。

照射下における原子炉材料中には, 核分裂によって空孔, 格子間原子, 転位などの照射欠陥が生成され, また, 原子燃料中にはその他にも核分裂生成物が蓄積する。被照射金属-合金材料では, 照射された材料中にボイド格子, 欠陥成分の秩序配置などパターン構造を形成するものが見出されており[2-4], 照射下での不安定性の発現に関する研究が報告されている[5,6]。Walgraefらは金属-合金材料のパターン形成を照射欠陥成分の反応拡散相互作用モデルで定式化し, 線形安定性解析により系の安定-不安定のしきい条件を導出した。さらに Walgraefらは, 定式化した方程式について照射欠陥の濃度変化のシミュレーションを行い, 欠陥がある秩序を持って空間に局在する結果が得られたことを報告している[7-9]。

本研究では、原子燃料セラミックスに見られる細粒化現象を、格子間原子、空孔、転位などの照射欠陥や稀ガス等の核分裂生成物が照射下において反応・拡散した結果生じる自己組織化現象のひとつとしてとらえ、照射欠陥の反応速度論方程式で定式化し、線形安定性解析による系の安定性およびそのしきい条件を評価するとともに、パターン構造の形成について1次元環状モデルでの数値シミュレーションを行った。

【計算モデル】

照射欠陥の相互作用モデルを Fig.2 に示す。計算要素として、ウラン格子点の空孔(V)、格子間ウ

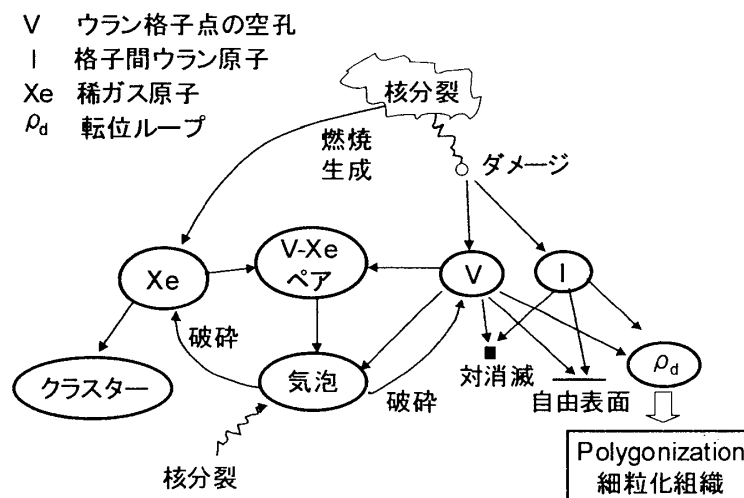


Fig.2 照射欠陥の相互作用モデル

ラン原子(I)、格子間稀ガス原子(Xe)、V-Xe ペア、気泡および転位(ρ_d)を考えた。燃料中で核分裂が起こると、核分裂ダメージによって結晶の格子点から格子間にウラン原子がはじき出され、V および I が同数生成する。生成したVとIは燃料固体中を拡散するが、その過程で一部は再結合して消滅し、一部は結晶粒界などの自由表面に吸収されて消滅する。また、Iは互いに1次元的に結合して転位(ρ_d)とよばれる線欠陥を形成する。 ρ_d はIを吸収することにより成長し、Vを吸収することにより消滅する。さらに核分裂反応では、反応の結果、核分裂エネルギーとともに燃料中に溶けにくい核分裂生成ガス(主に稀ガス)が生成する。稀ガス(Xe)は単原子の状態で生成するが、結晶中に単原子で存在するには高いエネルギーが必要となるためVと結合し、エネルギーが低く、より安定なV-Xe ペアとなって存在する。V-Xe ペアは燃料中を拡散し、他のV-Xe ペアと相互作用して気泡を形成する。気泡はV-Xe ペアおよびVを吸収し、体積を増して成長する。成長した気泡は核分裂ダメージによって破碎され、V および Xe が燃料中に放出されるが、これらは再び結合し、より安定なV-Xe ペアとなって燃料中に存在する。以上の照射欠陥の相互作用を反応速度論方程式で表すと、以下の7本の方程式が得られる。

$$\frac{dC_v}{dt} = Q + K_{br}(C_{vS} - C_{vSX}) - K_{iv}C_iC_v - K_{vx}C_{xi}C_v - K_{igb}D_vC_v - K_{vb}C_{vS}C_v - Z_L\rho_dD_vC_v + D_v\nabla^2C_v \quad (1)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = Q - K_{iv}C_vC_i - K_{igb}D_iC_i - (1 + \varepsilon_2)Z_L\rho_dD_iC_i + (1 + \varepsilon_1)D_i\nabla^2C_i \quad (2)$$

$$\frac{dC_{xi}}{dt} = Q_{xi} - K_{vx}C_vC_{xi} - Z_{Lx}\rho_dD_{xi}C_{xi} + D_{xi}\nabla^2C_{xi} \quad (3)$$

$$\frac{dC_{xs}}{dt} = K_{vx}C_vC_{xi} + K_{br}C_{vSX} - K_{xb}C_{vS}C_{xs} + D_{xs}\nabla^2C_{xs} \quad (4)$$

$$\frac{dC_{vS}}{dt} = K_{xb}C_{xs}C_{vS} + Z_{Lx}\rho_dD_{xi}C_{xi} + K_{vb}C_vC_{vS} - K_{br}C_{vSX} \quad (5)$$

$$\frac{dC_{vSX}}{dt} = K_{xb}C_{xs}C_{vS} + Z_{Lx}\rho_dD_{xi}C_{xi} - K_{br}C_{vSX} \quad (6)$$

$$\frac{d\rho_d}{dt} = a_0Z_L\rho_d((1 + \varepsilon_2)D_iC_i - D_vC_v) \quad (7)$$

ここで、 C_v , C_i , C_{xi} , C_{xs} , C_{vS} , C_{vSX} , ρ_d は空孔、格子間ウラン原子、格子間稀ガス原子、空孔-稀ガスペア、気泡中の格子点、気泡中の稀ガス原子、転位の濃度をそれぞれ示す。式(2)の ε_1 および ε_2 は拡散係数が相互作用の種類によって異なることを仮定して導入したパラメータである。例えば、転位の周囲には応力場が存在するため、転位近傍の拡散速度は応力の無い領域とは一般に異なっている。その他のパラメータは Table 1 の通りである。

Table 1 方程式(1)-(7)で用いられているパラメータ

パラメータ	定義	パラメータ	定義
C_v	V 濃度	D_i	I の拡散係数
C_i	I 濃度	D_v	V の拡散係数
C_{xi}	Xe 濃度	D_{xi}	Xe の拡散係数
C_{xs}	V-Xe ペア濃度	D_{xs}	V-Xe ペアの拡散係数
C_{vS}	気泡中の格子点濃度	k_{iv}	V, I の結合定数
C_{vSX}	気泡中の Xe 濃度	k_{xv}	V, Xe の結合定数
ρ_d	転位密度	k_{igb}	自由表面のシンク強度
Q	I, V の生成率	k_{vb}	V, 気泡の結合定数
Q_x	Xe の生成率	k_{xb}	V-Xe ペア, 気泡の結合定数

Table 1 Contd.

パラメータ	定義	パラメータ	定義
k_{br}	気泡の破碎定数	ε_1	拡散係数パラメータ(拡散項)
Z_L	V, I に対する転位強度	ε_2	拡散係数パラメータ(転位項)
Z_{Lx}	Xe に対する転位強度		

式(1)-(7)の方程式について、線形安定性解析により、定常状態における系の安定性を調べた。定常状態の安定性は定常解に対する固有値の実部の符号を調べることで判別することができる。すなわち、固有値の実部の符号が負のとき、系は安定であり、一方、固有値の実部の符号が正のとき、系は不安定である。系の定常状態が不安定なとき、系に固有の波数成分を含む揺らぎが外部から与えられると定常状態が発散し、その波数に相当する特徴長さを有するパターン構造が形成される可能性がある。最大の固有値の実部が負から正に転換する点を系の安定-不安定のしきい条件として、これを解析的、数値的に評価した。また、固有値解析で判別した不安定領域において、Fig.3 に示す空間方向 1 次元環状モデルでの欠陥成分の濃度変化の数値シミュレーションを行い、パターン構造の

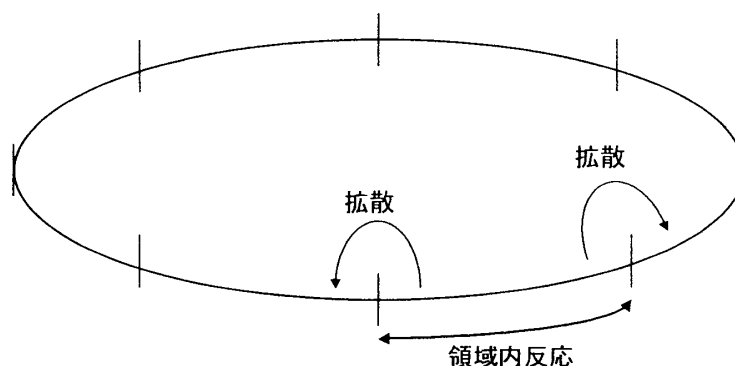


Fig.3 数値シミュレーションの 1 次元環状モデル

発現について調べた。1 次元環状モデルでは、1 次元環を複数の領域に分割し、欠陥成分の領域内での反応と領域間での拡散を考えた。拡散作用を有する欠陥成分は V, I, Xe, V-Xe ペアである。各領域内の欠陥濃度を時間積分して導出し、これを領域ごとに比較することで、欠陥成分の空間分布を評価した。

【結果】

照射によって生成する欠陥の種類に着目すると、燃焼度によってその存在状態を場合分けすることができる。すなわち、燃焼初期にはまず空孔(V)および格子間ウラン原子(I)が生成され、次に転位

(ρ_d)が発達する。燃焼が進むと不溶性核分裂生成物の稀ガス原子(Xe)が生成し、燃料中に V-Xe ペアが蓄積される。さらに燃焼が進むと、V-Xe ペアの相互作用により気泡が発達する。燃料中の欠陥成分の存在状態についてステージ分けし、それぞれのステージごとに定常解に対する固有値解析を行い、系の安定性を評価した。各ステージでの固有値の符号を調べてみると、欠陥成分として V および I のみが存在する初期ステージでは固有値の符号が負で、系が安定であることを示したのに対して、燃焼が進み転位が発達してくると、固有値の符号が正で系が不安定となる状態が存在することが分かった。そこで、不安定性の発現する条件をより詳細に調べるために、式(1)-(7)の方程式について、V、I および ρ_d の相互作用のみを考え、式(8)-(10)で与えられる 3 本の方程式に縮約した。

$$\frac{dc_v}{d\tau} = q - c_i c_v - c_v - r_d c_v + \hat{\nabla}^2 c_v \quad (8)$$

$$\alpha \frac{dc_i}{d\tau} = q - c_v c_i - c_i - (1 + \varepsilon_2) r_d c_i + (1 + \varepsilon_1) \hat{\nabla}^2 c_i \quad (9)$$

$$\beta \frac{dr_d}{d\tau} = (1 + \varepsilon_2) c_i r_d - c_v r_d \quad (10)$$

ここでは、計算を簡単化するために無次元化処理を施してある。無次元化に用いた関係式は式(11)の通りである。

$$c_v = \frac{K_{iv}}{K_{igb} D_i} C_v, \quad c_i = \frac{K_{iv}}{K_{igb} D_v} C_i, \quad r_d = \frac{Z_L}{K_{igb}} \rho_d, \quad q = \frac{K_{iv}}{K_{igb}^2 D_v D_i} Q, \quad (11)$$

$$\tau = K_{igb} D_v t, \quad \hat{\nabla}^2 = \frac{1}{K_{igb}} \nabla^2, \quad \alpha = \frac{D_v}{D_i}, \quad \beta = \frac{K_{iv}}{a_0 Z_L D_i}$$

式(8)、(9)はそれぞれ V および I 濃度の時間変化を表す式であり、それぞれについて、右辺第 1 項は生成項、第 2 項は対消滅項、第 3 項は自由表面への消滅項、第 4 項は ρ_d への吸収項、第 5 項は拡散項を示している。式(10)は転位密度の時間変化を表す式であり、第 1 項は I を吸収して ρ_d が成長する効果、第 2 項は V を吸収して ρ_d が消滅する効果をそれぞれ示している。また、式(9)、(10)の左辺の α および β は時間に関する規格化係数である。

この系の安定性を数値計算で調べた結果、固有値 ω は転位密度 r_d 、拡散速度パラメータ ε_1 および ε_2 に依存しており、これらの値によって符号の転換を示すことが分かった。 ω 、 ε_1 および ε_2 が十分小さい領域では、これらのパラメータに関して展開し、それぞれの 2 次以上の項を無視することで、安定-不

安定性のしきい条件として式(12)の関係式が得られる。

$$\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} = - \frac{\left(1 + \sqrt{r_d(1+r_d)} - \sqrt{4q + (1+r_d)^2}\right)^2}{r_d(1+r_d)} \quad (12)$$

ここで q は V および I の無次元化した生成率で、定数である。式(12)を見ると分かるように、この系の安定-不安定性は、 r_d , ε_1 および ε_2 のバランスによって決定されている。そこで、 ε_1 および ε_2 を固定し、無次元化した転位密度 r_d をパラメータとして固有値 ω の変化を調べた。Fig.4 に ε_1 および ε_2 を固定し、 r_d

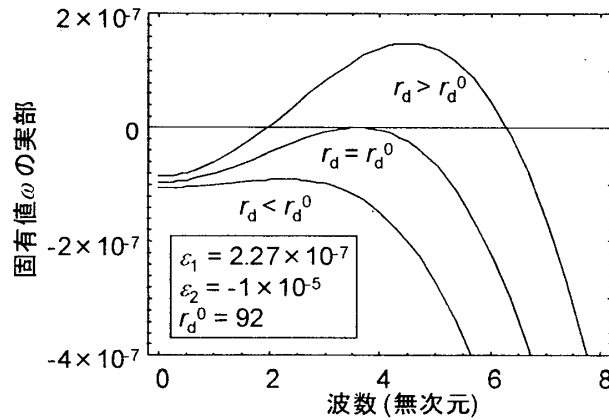


Fig.4 固有値の転位密度依存性

を変化させたときの ω の変化を示す。ここで r_d^0 は与えられた ε_1 および ε_2 に対して式(12)の条件を満たす転位密度である。この図に見られるように、 $r_d < r_d^0$ の条件では固有値は負の値を有しているが、 r_d の増加とともに ω の最大値も増加し、 $r_d = r_d^0$ のときに ω の最大値は $\omega = 0$ に接するようになる。 r_d がさらに増加し、 $r_d > r_d^0$ のときに ω の最大値は正に転換した。これは、 ε_1 および ε_2 が与えられた条件下では転位密度についてしきい条件が存在することを示している。このことから照射によって転位が発達し、その密度があるしきい値よりも大きくなると系が不安定になることが分かった。

Fig.5 に式(8)-(10)を時間積分して得られる転位の密度変化を示す。系が定常状態にある点を出発時刻 $t=0$ とし、 V および I の初期値は式(8), (9)の左辺を0として得られる定常解をそれぞれ用いた。 ρ_d の初期値、 ε_1 および ε_2 は、固有値解析の結果、定常状態が不安定であることを示した $r_d = 92$, $\varepsilon_1 = 1 \times 10^{-1}$ および $\varepsilon_2 = -1 \times 10^{-5}$ を用いた。1次元環状モデルの分割領域数を20とし、初期ゆらぎとして、ある一つの領域だけに、他の領域の転位密度よりも 10^{-5} 程度小さい初期値を与えた。それぞれの領域

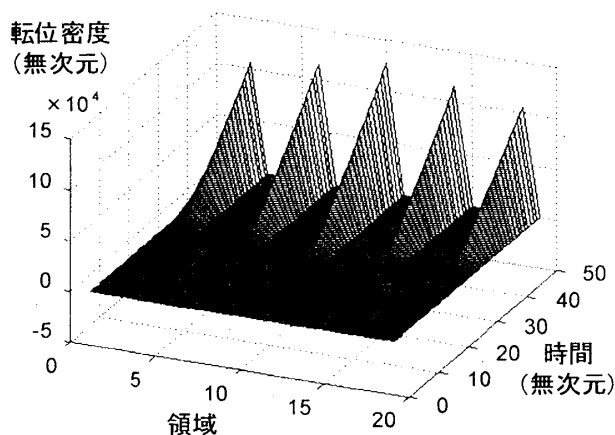


Fig.5 転位密度の時間変化

における転位密度の時間変化を追跡すると、 $t=0$ で転位が空間的に均一分布していた系から、ある時間が経過した後に領域ごとの転位密度に差が現われ、空間的に不均一な分布となる経過が示されている。一方、負の固有値を与える r_{db} , ε_1 および ε_2 の条件下では系が安定であるため、外部から揺らぎが与えられても定常状態は発散せず、転位の不均一分布は観測されなかった。高燃焼原子燃料の細粒化組織では、ある特徴長さの粒径を有する微小な結晶粒が集合して新しいパターン構造を形成する。これは燃焼前のより大きな結晶粒の中で、転位等の格子欠陥が細粒化組織の粒径に相当する特徴長さの間隔で、2次元あるいは3次元的に規則的に局在して形成されたものと理解することができる。本研究で行ったシミュレーションは1次元計算であるが、転位が空間方向に規則性を持って局在する様子が示されている。この結果は定性的ではあるが、照射欠陥の反応拡散相互作用によって細粒化組織が形成され得ることを示している。

【結言】

本研究では高燃焼原子燃料セラミックスで形成される細粒化組織について、照射により生成される欠陥成分の反応拡散相互作用による組織形成モデルの定式化を試みた。相互作用を一連の反応拡散方程式で表し、まず線形安定性解析による系の安定性およびそのしきい条件について調べた。定常解に対する固有値の符号を追跡することにより、転位があるしきい値を超えて成長すると系が不安定となることを明らかにした。次に系が不安定な状態にあるときの欠陥濃度の時間変化を、空間方向1次元環状モデルについて数値シミュレーションで調べた。その結果、ごくわずかなゆらぎが外部から与えられると、欠陥成分の空間分布が均一な系から、反応拡散相互作用によって不均一な構造が生じることを確認できた。本研究では不安定性の発現を調べるために3本の簡単な方程式に縮約したが、観測される細粒化組織の近傍には気泡が存在しており、パターン形成に何らかの効果を有していると考えられている。今後稀ガスおよび気泡の効果を取り入れた相互作用について調べることで、実際の

原子炉中での相互作用により近い状況でのシミュレーションを進める。

[参考文献]

1. M. Kinoshita, *J. Nucl. Mater.*, **248**, 185 (1997).
2. J. H. Evans, *Nature*, **229**, 403 (1971).
3. D. J. Mazey and J. H. Evans, *J. Nucl. Mater.*, **138**, 16 (1986).
4. J. H. Evans and D. J. Mazey, *J. Nucl. Mater.*, **138**, 176 (1986).
5. G. Martin, *Phys. Rev. B*, **30**, 1424 (1984).
6. S. M. Murphy, *Europhys. Lett.*, **3**, 1267 (1987).
7. D. Walgraef and N. M. Ghoniem, *Phys. Rev. B*, **39**, 8867 (1989).
8. D. Walgraef and N. M. Ghoniem, *Phys. Rev. B*, **52**, 3951 (1995).
9. D. Walgraef, J. Lauzeral and N. M. Ghoniem, *Phys. Rev. B*, **53**, 14782 (1996).